

Metal-Oxide-Metal 薄膜トンネル素子の酸化膜
厚に関する考察

鈴木 義教・犬飼 清男・熊谷 泰爾

工学部 電子工学科

1. はしがき

Metal-Oxide-Metal 薄膜トンネル素子の電気伝導に関して多くの理論的研究がなされている。しかし、理論から得られる電流値は実験から得られる電流値よりもはるかに小さい。実験値を理論的に説明するために、トンネル効果においては、エネルギーとモーメントとの間にはもはや放物線関係が成り立たないとして、障壁の深いところを透過する電子の有効質量は減少し、その結果、等価的に障壁の厚さが減少するという考えによる理論⁽¹⁾や、容量測定から求まる酸化膜厚と実際にトンネル電流に寄与する膜厚とは違っている、あるいは膜厚が一様でないという考え方による理論が発表されている。^{(2), (3), (4)} しかし、前者においては、有効質量を理論的に確定することができず、また実測値も測定者により非常に異なっている。⁽⁵⁾ 一方後者においては、トンネル電流を簡単な式で近似しており、より厳密な表示式に対しては不合理な膜厚分布を仮定している。

本論文では、後者の考え方によって、鏡像力効果⁽⁶⁾と両電極への field penetration⁽⁷⁾を考慮した障壁模型に基づいたより厳密なトンネル電流式を用いて、酸化膜の厚さの分布がここで提案する修正されたポアソン分布であると仮定して理論的に電流-電圧特性を求める。また、陽極酸化法によって製作された Al-Al₂O₃-Al 素子の電流-電圧特性の実測値、および他の実験者の実測値と比較検討を行なった。

2. トンネル電流計算法

2.1 膜厚一様な場合のトンネル電流

Metal-Oxide-Metal 薄膜トンネル素子の酸化膜の厚さが一様である場合、Fig. 1 のように障壁を一次元で考えると、トンネル電流密度 J は一般に次式で表わされる。⁽⁸⁾

$$J = \frac{4\pi mekT}{h^3} \int_0^\infty \ln \left(\frac{1 + \exp \frac{\eta - Ex}{kT}}{1 + \exp \frac{\eta - Ex - eV}{kT}} \right) D(Ex) dEx \quad (1)$$

ここで、 m は自由電子の質量、 e は電子の電荷、 k はボルツマン定数、 T は素子の絶対温度、 h はプランク定数、 η は金属電極 I のフェルミーエネルギー、 Ex は電子のエネルギーの x 成分、 V は印加電圧、 $D(Ex)$ は Ex を持つ電子が障壁を透過する確率を表わす。透過確率 $D(Ex)$ は WKB 近似を用いると、

$$D(Ex) = \exp \left[- \frac{4\pi}{h} (2m)^{1/2} \int_{S_1}^{S_2} (\eta + \phi(x) - Ex)^{1/2} dx \right] \quad (2)$$

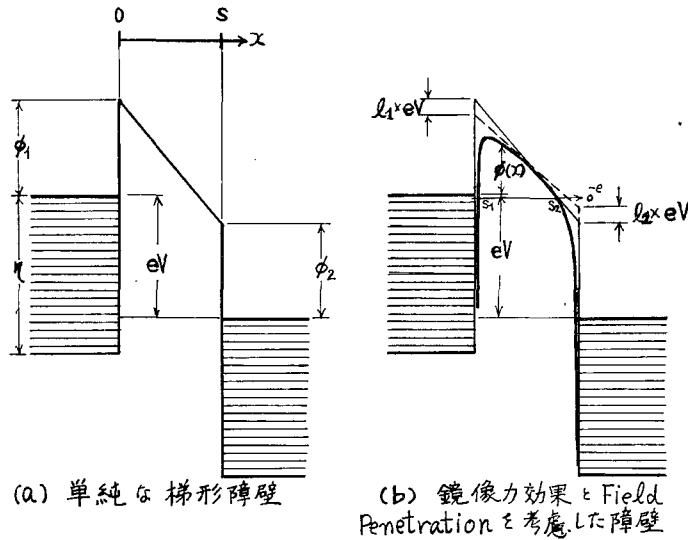


Fig. 1 Metal-Oxide-Metal 薄膜トンネル素子の一次元バンドモデル

で表わされる。 $\phi(x)$ は Fig. 1 (b) に示すように金属電極 I のフェルミレベルから測った障壁の高さであり, Simmons の提案した金属電極の鏡像力効果⁽⁶⁾と, field penetration⁽⁷⁾ に対する障壁の補正を施すと次式で表わされる。

$$\phi(x) = \phi_1 + l_1(\phi_2 - \phi_1 - eV) + (1 - l_1 - l_2)(\phi_2 - \phi_1 - eV) \frac{x}{s} - 1.15 \frac{e \ln 2}{8 \pi \epsilon_s \epsilon_0 s} \frac{s^2}{x(s-x)} \quad (3)$$

ここで ϕ_1 , ϕ_2 は Fig. 1 に示すようにそれぞれ金属電極 I, II の酸化膜に対する仕事関数, l_1 , l_2 はそれぞれ金属電極 I, II への field penetration に対する障壁の補正因子, s は酸化膜の厚さ, ϵ_s は酸化膜の比誘電率, ϵ_0 は真空の誘電率である。さらに, (2) 式は Simmons の近似を用いると,⁽⁶⁾

$$D(E_x) = \exp \left[- \frac{4 \pi}{h} (2m)^{1/2} \beta (s_2 - s_1) (\eta + \bar{\phi} - E_x)^{1/2} \right] \quad (4)$$

となる。ただし,

$$\begin{aligned} \bar{\phi} &= \frac{1}{s_2 - s_1} \int_{s_1}^{s_2} \phi(x) dx \\ &= \phi_1 + l_1(\phi_2 - \phi_1 - eV) + (1 - l_1 - l_2)(\phi_2 - \phi_1 - eV) \frac{s_1 + s_2}{2s} \\ &\quad - 1.15 \frac{e \ln 2}{8 \pi \epsilon_s \epsilon_0 (s_2 - s_1)} \ln \left[\frac{s_2(s - s_1)}{s_1(s - s_2)} \right] \end{aligned} \quad (5)$$

$$\beta = \frac{\int_{s_1}^{s_2} (\eta + \phi(x) - Ex)^{1/2} dx}{\exp[(s_2 - s_1)(\eta + \phi - Ex)^{1/2}]} \quad (6)$$

Simmons は β の値を、金属電極 I のフェルミレベル付近にある電子だけが透過すると考えて、 $eV > \phi_2$ のときは $\beta = 23/24$ 、 $0 < eV < \phi_2$ のときは $\beta = 1$ としているが、次節に示すように、 β の値は酸化膜厚 s 、印加電圧 V で異なった値を用いなければならない。しかし、 s および V が与えられると β の値はトンネル電流に寄与する電子のエネルギーレベルに対しては一定と見なされるので、透過する電子のエネルギー分布曲線が最大となる Ex に対する β の値を求め、この値を用いてトンネル電流を計算することができる。

2.2 膜厚が一様でない場合のトンネル電流

酸化膜の厚さが一様でない場合には、膜厚 s は電子が実際に酸化膜に入射する位置、すなわち能動面の位置で異なり、 y, z 座標を用いると、 $s(y, z)$ で表わされる。電流密度は s および印加される電界の関数であるが、電界は能動面の位置 (y, z) に関係なく一定であるととし、電流密度 $J[s(y, z)]$ で表わす。その時観測されるトンネル電流 I は $J[s(y, z)]$ を素子の能動面積 A について積分することによって得られる。

$$I = \int_A J[s(y, z)] dydz \quad (7)$$

また、平均のトンネル電流密度 $\langle J \rangle$ は

$$\langle J \rangle = I/A = 1/A \int_A J[s(y, z)] dydz \quad (8)$$

である。ここで、酸化膜厚の確率関数 $P(s)$ を導入すると、

$$\langle J \rangle = \int_s J(s) dP(s) \quad (9)$$

と書ける。

酸化膜厚の確率関数 $P(s)$ は素子の製作条件によって異なり、理論的表現式を見出すことは困難であるが、Chow は酸化膜を形成する際の原子の到着と結合とが random であると仮定して $P(s)$ に次のようなポアソン分布を用いている。⁽²⁾

$$\left. \begin{aligned} P(s=nq) &= 0 \quad (n=0) \\ P(s=nq) &= \frac{\exp(-\lambda)}{1 - \exp(-\lambda)} \frac{\lambda^n}{n!} \quad (n=1, 2, 3, \dots) \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

ここで、 q は 1 つの step を表わし、酸化膜の格子定数に等しいと考えられる。 λ は素子によって定まる定数である。平均の酸化膜厚 s は

$$s = \sum_{n=0}^{\infty} nq \cdot P(nq) = \frac{\lambda q}{1 - \exp(-\lambda)} \quad (11)$$

である。トンネル電流密度 $\langle J \rangle$ は (9) 式より

$$\langle J \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} J(s) \cdot P(s) \quad (12)$$

と表わされる。Crowell や Hurych は能動面のトンネル電流密度を

$$J[s(y, z)] = C \exp[-\alpha \cdot s(y, z)] \quad (13)$$

と仮定し、酸化膜厚 s に (10) 式の分布を施し、 $\langle J \rangle$ を

$$\langle J \rangle = \frac{C [\exp\{\lambda \exp(-q\alpha)\} - 1]}{\exp(\lambda) - 1} \quad (14)$$

と求めている。ここで、定数 C および α は、トンネル電流に寄与する有効膜厚 s_t に対しても

$$\langle J \rangle = C \exp(-\alpha s_t) \quad (15)$$

が成り立つと仮定して、 $V/J-V$ 特性の実測値から求めている。その時、有効膜厚 s_t は

$$s_t = -\frac{1}{\alpha} \ln \left[\frac{\exp\{\lambda \exp(-q\alpha)\} - 1}{\exp(\lambda) - 1} \right] \quad (16)$$

のようになる。^{(3), (4)}

しかし、(1) および (4) 式で表現されるようなより厳密なトンネル電流の膜厚依存性は、明らかに Chow や Hurych の仮定した単純な形の (13) 式では表わせない。また、膜厚のわずかな変化により電流は極めて大きく変化する。トンネル電流に対し、より厳密な (1) および (4) 式を用いる場合には、(10) 式のポアソン分布では不十分である。実際、 n の値が小さいときには $J(s)$ は非常に大きな値となり、その結果、(10) 式の分布を施した電流密度 $\langle J \rangle$ は酸化膜が破壊されるような大きい値になる。実験結果によれば、陽極酸化法などによる酸化膜の表面には、酸化膜材料の格子定数より大きい不均一膜厚部が存在するのは事実である。そこで、酸化膜の不均一性に対し、(10) 式で示される程には薄い部分が存在しないような確率関数を考えるのが妥当である。上記の考えに基づき、本論文では、実際の酸化膜厚の確率関数が (10) 式で表わされるものでなく、次のような修正したポアソン分布であるものと仮定する。

$$\left. \begin{aligned} P(s=nq) &= 0 \quad \{n=0, 1, 2, \dots, (\kappa-1)\} \\ P(s=nq) &= \frac{\exp(-\lambda)}{1 - \exp(-\lambda) \left\{ 1 + \lambda + \dots + \frac{\lambda(\kappa-1)}{(\kappa-1)!} \right\}} \frac{\lambda^n}{n!} (n/\kappa) \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

κ は酸化膜の一番薄い部分の step の数である。(17) 式は

$$\sum_{n=0}^{\infty} P(nq) = 1 \quad (18)$$

を満足する。この時、平均の酸化膜厚 s は

$$s = \sum_{n=0}^{\infty} nq \cdot P(nq) = \frac{\lambda q [1 - \exp(-\lambda) \left\{ 1 + \lambda + \dots + \frac{\lambda^{(\kappa-2)}}{(\kappa-2)!} \right\}]}{1 - \exp(-\lambda) \left\{ 1 + \lambda + \dots + \frac{\lambda^{(\kappa-1)}}{(\kappa-1)!} \right\}} \quad (19)$$

であり、 λ は s が容量測定から求まる膜厚に等しいと仮定して (19) 式から求められる。この時 κ は、(17) 式の膜厚分布を施して得られる電流値と測定された電流値とが最も近づくような整数値を選ぶ。

3. 数値解析と実験結果

トンネル電流の計算において、実験値と比較する目的で、薄膜トンネル素子のパラメータを次のように設定する。

$$\phi_1 = 2.0 \text{ eV}$$

$$\phi_2 = 2.0 \text{ eV}$$

$$l_1 = 0.132$$

$$l_2 = 0.132$$

$$\epsilon_s = 8.0$$

$$q = 5.0 \text{ \AA}$$

$$T = 77^\circ \text{K}$$

ϕ_1 , ϕ_2 は Al-Al₂O₃ 間の仕事関数を想定する。この値は多くの人々によって実験的に求められているが、実験者によって異なった値が報告されている。本論文では Simmons やその他の人々も用いている値を採用。 l_1 , l_2 は Simmons の計算値である。⁽⁷⁾ Al₂O₃ の比誘電率の値にも問題があるが、ここでは、容量測定から膜厚を計算する場合と同様に Al₂O₃ バルクの比誘電率を採用した。

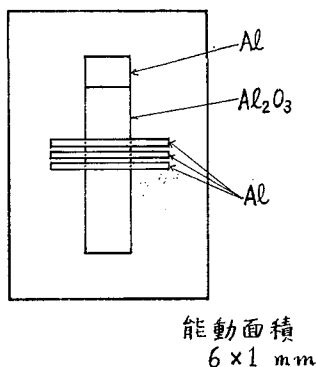


Fig. 2 Al-Al₂O₃-Al 薄膜トンネル素子の形状

実験試料の形状は Fig. 2 に示されている。Al₂O₃ 膜は pH 5.5 の酒石酸アンモニウム溶液中で、Al 蒸着膜を陽極、炭素棒を陰極にして、酸化が十分に進まないうちは定電流にし、酸化が進んで来たら定電圧にした陽極酸化法で製作した。Sample 8-8-1 は、初期

電流 $1.0\text{mA}/\text{cm}^2$, 酸化電圧 1.5V である。容量測定, および電流-電圧特性の測定は液体窒素温度で行なった。

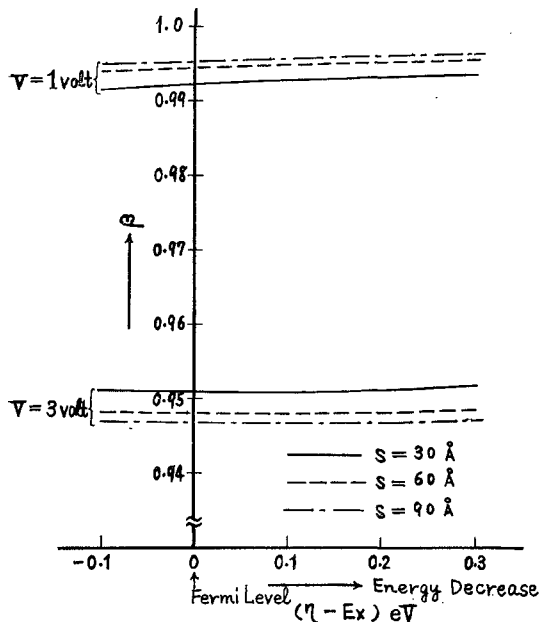


Fig. 3 Correcting factor β の変化

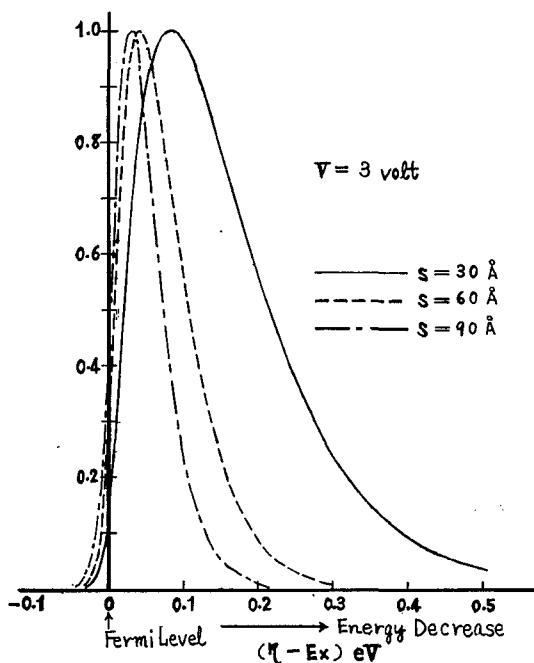


Fig. 4 エネルギー分布曲線

Fig. 3 に, (6) 式で示した透過電子のエネルギーレベルに対する β の値を, また, Fig. 4 には, エネルギー分布曲線を酸化膜厚 s と印加電圧 V をパラメータとして描いてある。Fig. 4 から理解できるように, 透過電子の大部分はエネルギー分布が最大となる E_x 付近の狭い範囲に限られているから, これらの電子に対する β の値は, V および s が与えられるとその範囲ではほぼ一定である。ゆえに, 電流密度 J は, 与えられた V, s に対してエネルギー分布が最大となるエネルギーレベル E_x について β の値を求めるだけで計算できる。

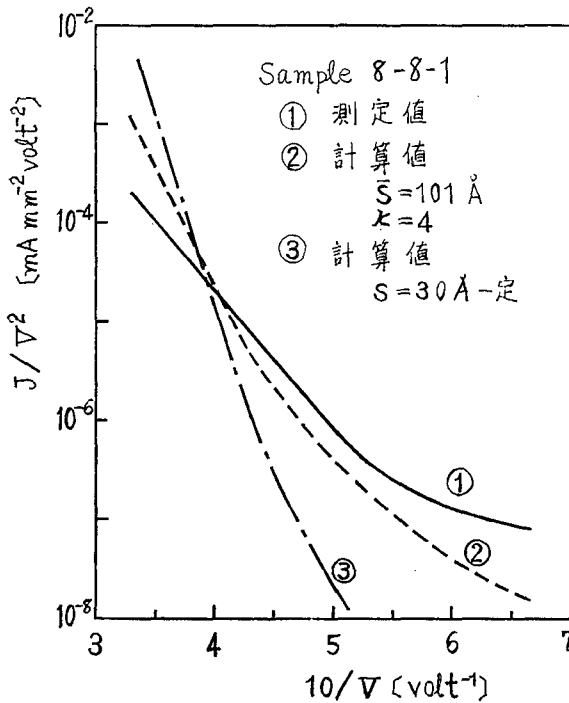


Fig. 5 $J/V^2-1/V$ 特性

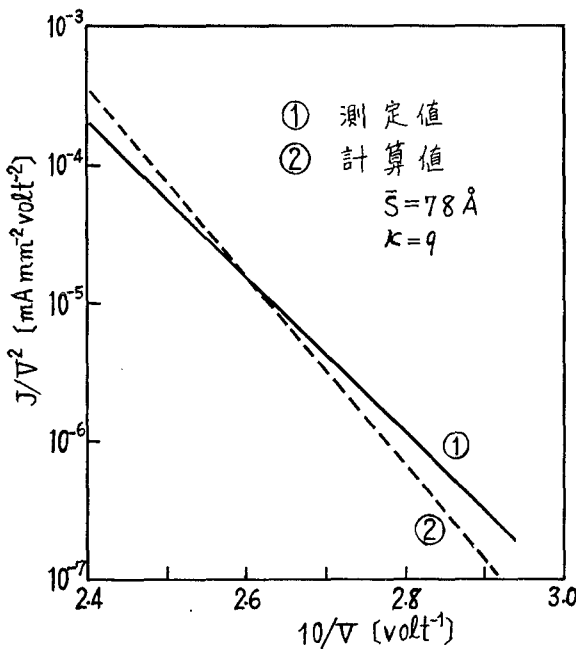


Fig. 6 $J/V^2-1/V$ 特性

Fig. 5 において、曲線①は Sample 8-8-1 の実験から得られた $J/V^2-1/V$ 特性であり、容量測定から $s=101 \text{ \AA}$ が得られた。曲線②は、(19)式で $s=101 \text{ \AA}$ 、 $\kappa=4$ として λ の値を求め、(17)式で示された酸化膜厚の確率関数 $P(s)$ を求め、つぎに、この $P(s)$ と前記のようにして求めた $J(s)$ とから ((12)式参照) 平均のトンネル電流密度 $\langle J \rangle$ を計算して得られた $J/V^2-1/V$ 特性である。曲線③は、 $s=30 \text{ \AA}$ 一定として計算した $J/V^2-1/V$ 特性である。また、Fig. 6 において、曲線①は Nelson 等の測定値、⁽⁹⁾ 曲線②は、 $s=78 \text{ \AA}$ 、 $\kappa=9$ のポアソン分布を考慮した計算値を示したものである。

Fig. 5 の曲線②と曲線③とを比較すると、明らかに、酸化膜厚にポアソン分布を施した方が測定値に近い傾きを示している。したがって、トンネル電流に対する有効膜厚を決定する際には、本文のような酸化膜厚の分布を考えた上で決定するのが適当と思われる。

4. むすび

測定値と計算値とを比較すると、直線関係を示す部分は測定値の方が印加電圧が高い部分まで延びている。これは前節で述べたように素子のパラメータの値の設定に問題があり、酸化膜の両側界面における障壁の高さが、 $\phi_1 < \phi_2$ の構造であるためと思われるが、なお引続き検討を行なう予定である。

本解析法を用いると、実験を行なったトンネル素子の平均の酸化膜厚は 101\AA であるが、 20\AA の最も薄い部分を考えられなければならない、それに対して、Nelson 等の実験試料は平均膜厚が 78\AA であり、考慮すべき最も薄い部分は 40\AA となっている。このことから、後者の方が膜厚均一度が優れているという実験条件の比較検討を行なうことができる。

なお、計算には TOSBAC 3400 を用いた。

本論文の一部は昭和43年度秋季応用物理学会講演会において発表されたものである。

参考文献

- (1) R. Stratton; G. Lewwicki and C. A. Mead;
The Effect on Non-Parabolic Energy Bands on Tunnelling through Thin Insulating Films,
J. Phys. Chem. Solids, **27**, 1599, (1966).
- (2) C. K. Chow;
Effect of Insulating-Film-Thickness Non-Uniformity on Tunnel Characteristics,
J. Appl. Phys., **34**, 2599, (1963).
- (3) Z. Hurych;
Influence of Non-Uniform Thickness of Dielectric Layer on Capacitance and Tunnel Current,
Solid-State Electronics, **9**, 967, (1966).
- (4) C. R. Crowell;
Interpretation of Tunnel Emission and Capacitance Measurements in the Presence of Dielectric Film-Thickness Fluctuation,
Appl. Phys. Letters, **8**, 328, (1966).
- (5) P. Schnupp;
A δ -well Model for Solid-State Tunnelling,
Solid-State Electronics, **10**, 785, (1967).
- (6) J. G. Simmons;
Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film,
J. Appl. Phys., **34**, 1793, (1963).
- (7) J. G. Simmons;
Incorporation of Electric-Field Penetration of the Electrodes in the Theory

- of Electron Tunnelling through a Dielectric Layer,
Brit. J. Appl. Phys., **18**, 269, (1967).
- (8) J. G. Simmons;
Generalized Thermal J-V Characteristic for the Electric Tunnel Effect,
J. Appl. Phys., **35**, 2655, (1964).
- (9) O. L. Nelson and D. E. Anderson;
Potential Barrier Parameters in Thin-Film Al_2O_3 -Metal Diodes,
J. Appl. Phys., **37**, 77, (1967).

Oxide Film Thickness in Thin Film Metal-Oxide-Metal Tunnel Devices

Yoshinori SUZUKI, Kiyoo INUKAI and Yasuji KUMAGAI

Department of Electronic Engineering, Faculty of Engineering

The electron tunnelling effect through a thin insulating film between two metal electrodes has been investigated by many authors. However, the experimental values of the current-voltage characteristics have not always coincided with the theoretical ones.

In this paper, assuming that those differences are caused by the presence of dielectric film-thickness fluctuation and that the film-thickness is distributed in accordance with a modified Poisson distribution, a numerical analysis of theoretical current-voltage characteristics is carried out, and compared with the experimental characteristics for Al-Al₂O₃-Al structures.